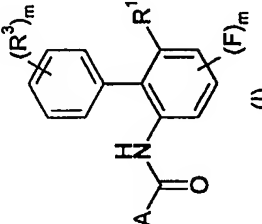
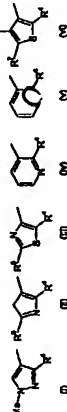
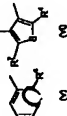
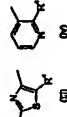
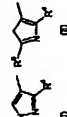
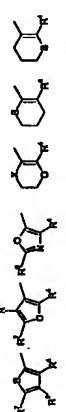
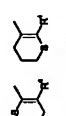
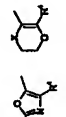
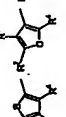


<p>2002-134670/18 C03 SUMO 2000.04.20 SUMITOMO CHEM CO LTD *JP 2001302605-A 2000.04.20 2000-119399(+2000JP-119399) (2001.10.31) C07C 233/64, A01N 37/22, 43/08, 43/10, 43/16, 43/18, 43/32, C07D 231/14, 277/32, 263/34, 335/02, 333/38, 327/06, 309/28, 307/68, 213/82, A01N 43/40, 43/56, 43/76, 43/78, 55/00 New biphenyl compounds, useful as agricultural and horticultural bactericidal agents C2002-041978</p>	<p>C(6-A2, 6-A3, 7-H1, 14-A1) .4</p>
<p><u>NOVELTY</u> Biphenyl compounds (I) are new.</p> <p><u>DETAILED DESCRIPTION</u> Biphenyl compounds of formula (I) are new.</p>	<div data-bbox="625 808 885 1029">  <p>(I)</p> </div> <p>R¹ = 1-10C alkyl, 1-10C haloalkyl, 2-10C alkenyl, 2-10C alkynyl, 3-10C cycloalkyl, 5-10C cycloalkenyl, 1-10C alkoxy, 1-10C haloalkoxy, 1-10C alkylthio, 1-10C haloalkylthio or Cl; n = 0-3; m = 0-5; R³ = halo, 1-10C alkyl, 1-10C haloalkyl, 1-10C alkoxyalkyl, 1-10C alkoxy, 1-10C haloalkoxy, 1-10C alkylthio, 1-10C haloalkylthio, 2-10C alkenyl, 2-10C alkynyl, 3-10C cycloalkyl, 5-10C cycloalkenyl, 1-10C alkoxy, 1-10C haloalkoxy, 1-10C alkylthio, 1-10C haloalkylthio or Cl; JP 2001302605-A+</p>

<p>cycloalkenyl, 2-6C alkoxy carbonyl, 3-30C trialkylsilyl; or $2R^3 = 3-5C$ alkylene, 3-5C haloalkylene, 2-4C alkyleneoxy, 2-4C haloalkyleneoxy, 1-3C alkyleneoxy, or 1-3C haloalkylenedioxy; A = a group of formula (i)-(xii); $R^4 =$ halo, 1-4C alkyl, 1-4C haloalkyl or cyano; $R^5 =$ H, 1-4C alkyl or 1-4C haloalkyl; $R^6 =$ H, halo, 1-4C alkyl, 1-4C haloalkyl, amino or cyano; $R^7 =$ H, 1-4C alkyl or 1-4C haloalkyl; and X = S, SO, SO₂, or CH₂.</p> <div style="display: flex; justify-content: space-around; align-items: flex-end;"> <div style="text-align: center;">  <p>(i)</p> </div> <div style="text-align: center;">  <p>(ii)</p> </div> <div style="text-align: center;">  <p>(iii)</p> </div> <div style="text-align: center;">  <p>(iv)</p> </div> <div style="text-align: center;">  <p>(v)</p> </div> <div style="text-align: center;">  <p>(vi)</p> </div> <div style="text-align: center;">  <p>(vii)</p> </div> <div style="text-align: center;">  <p>(viii)</p> </div> </div>	<p>None given.</p> <p><u>USE</u> Biphenyl compounds (I) are useful as agricultural horticultural bactericides.</p> <p><u>ADVANTAGE</u> The novel biphenyl compound has high plant disease controlling activities. (32pp055DwgNo.0/0)</p>
<p><u>ACTIVITY</u> Antibacterial; Plant protectant.</p> <p><u>MECHANISM OF ACTION</u></p>	<p style="text-align: right;">JP 2001302605-A</p>

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-302605

(P2001-302605A)

(43) 公開日 平成13年10月31日 (2001. 10. 31)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テームコード [*] (参考)
C 0 7 C 233/64		C 0 7 C 233/64	4 C 0 2 3
A 0 1 N 37/22	1 0 1	A 0 1 N 37/22	1 0 1 4 C 0 3 3
43/08		43/08	D 4 C 0 3 7
43/10		43/10	D 4 C 0 5 5
43/16		43/16	A 4 C 0 5 6
審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 32 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2000-119399 (P2000-119399)

(22) 出願日 平成12年4月20日 (2000. 4. 20)

(71) 出願人 000002093

住友化学工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(72) 発明者 阪口 裕史

兵庫県宝塚市高司4丁目2番1号 住友化学工業株式会社内

(74) 代理人 100093285

弁理士 久保山 隆 (外2名)

最終頁に続く

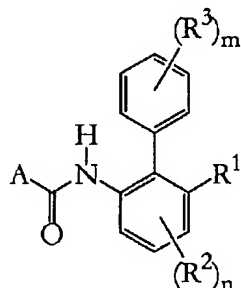
(54) 【発明の名称】 ビフェニル化合物およびその用途

(57) 【要約】

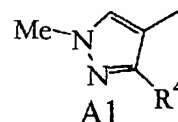
【課題】優れた植物病害防除効力を有する化合物を提供すること。

【解決手段】一般式 化1

【化1】



[式中、R¹はC1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基等を表わし、nは0～3の整数を表わし、R²はフッ素原子を表わし、mは0～5の整数を表わし、R³は同一または相異なり、各々ハロゲン原子、C1～C10アルキル基等を表わし、Aは以下のA1等

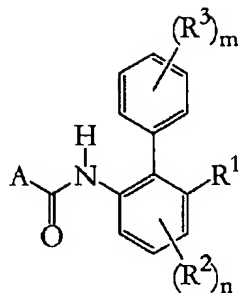


で示される基 (ここで、R⁴はハロゲン原子等を表わす。) を表わす。] で示されるビフェニル化合物。

【特許請求の範囲】

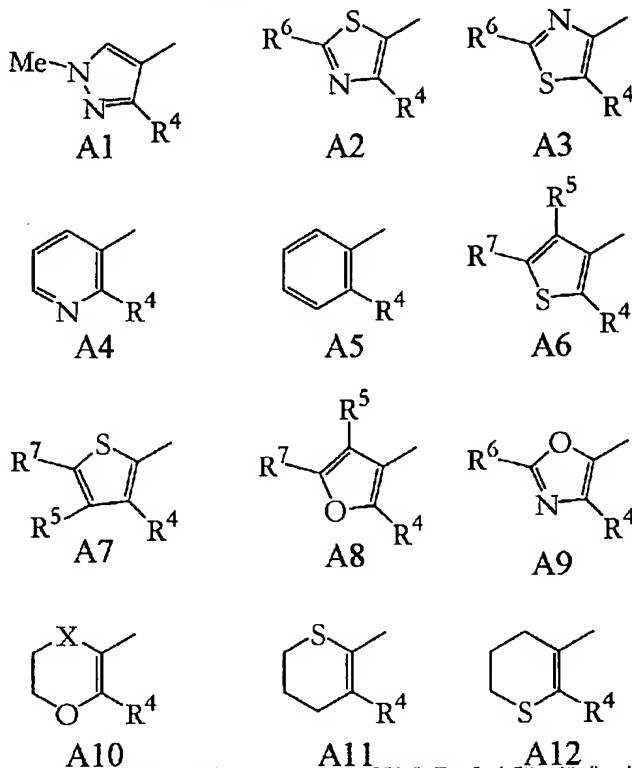
【請求項1】一般式 化1

【化1】



〔式中、R¹はC1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基、C2～C10アルケニル基、C2～C10アルキニル基、C3～C10シクロアルキル基、C5～C10シクロアルケニル基、C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基、C1～C10アルキルチオ基、C1～C10ハロアルキルチオ基または

塩素原子を表わし、nは0～3の整数を表わし、R²はフッ素原子を表わし、mは0～5の整数を表わし、R³は同一または相異なり、各々ハロゲン原子、C1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基、C1～C10アルコシアルキル基C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基、C1～C10アルキルチオ基、C1～C10ハロアルキルチオ基、C2～C10アルケニル基、C2～C10アルキニル基、C3～C10シクロアルキル基、C5～C10シクロアルケニル基、C2～C6アルコシカルボニル基、C3～C30トリアルキルシリル基を表わすか、あるいはmが2～5の整数である場合に隣りあう2つのR³でC3～C5アルキレン基、C3～C5ハロアルキレン基、C2～C4アルキレンオキシ基、C2～C4ハロアルキレンオキシ基、C1～C3アルキレンジオキシ基またはC1～C3ハロアルキレンジオキシ基を表わしてもよい。Aは以下のA1からA12



で示されるいずれかの基（ここで、R⁴はハロゲン原子、C1～C4アルキル基、C1～C4ハロアルキル基またはシアノ基を表わし、R⁵は水素原子、C1～C4アルキル基またはC1～C4ハロアルキル基を表わし、R⁶は水素原子、ハロゲン原子、C1～C4アルキル基、C1～C4ハロアルキル基、アミノ基またはシアノ基を表わし、R⁷は水素原子、C1～C4アルキル基またはC1～C4ハロアルキル基を表わし、Xは硫黄原子、SO基、SO₂基またはCH₂基を表わす。）で示されるビフェニル化合物。

【請求項2】上記一般式 化1において、nが0である請求項1に記載のビフェニル化合物。

【請求項3】上記一般式 化1において、AがA1、A2またはA4で示されるいずれかの基である請求項1または2に記載のビフェニル化合物。

【請求項4】上記一般式 化1において、AがA1またはA2で示されるいずれかの基である請求項1または2に記載のビフェニル化合物。

【請求項5】上記一般式 化1において、R³が同一または相異なり、各々ハロゲン原子、C1～C10アルキル

ル基、C1～C10ハロアルキル基、C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基、C1～C10アルキルチオ基またはC1～C10ハロアルキルチオ基である請求項1～4のいずれかに記載のビフェニル化合物。

【請求項6】上記一般式 化1において、R¹がC1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基、C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基または塩素原子である請求項1～5のいずれかに記載のビフェニル化合物。

【請求項7】上記一般式 化1において、R¹がC1～C10アルキル基、C1～C10アルコキシ基または塩素原子である請求項1～5のいずれかに記載のビフェニル化合物。

【請求項8】上記一般式 化1において、R¹がメチル基、メトキシ基または塩素原子である請求項1～5のいずれかに記載のビフェニル化合物。

【請求項9】請求項1～8のいずれかに記載のビフェニル化合物を有効成分として含有することを特徴とする農薬用殺菌剤。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明はビフェニル化合物及びその用途に関する。

【0002】

【従来の技術】国際特許出願公開明細書WO97/08148号にはある種のビフェニル化合物が有害菌類防除に有効であることが記載されているが、該化合物は植物病害防除効力の点で必ずしも十分であるとは言い難い。

【0003】

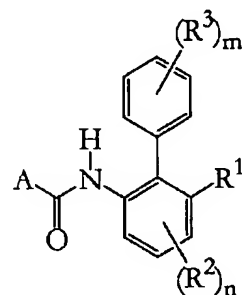
【発明が解決しようとする課題】本発明は、優れた植物病害防除効力を有する化合物を提供することを課題とする。

【0004】

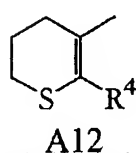
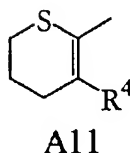
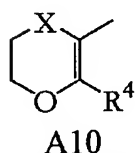
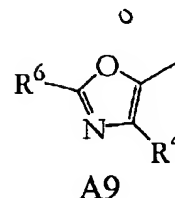
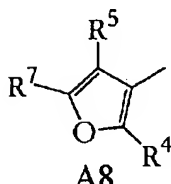
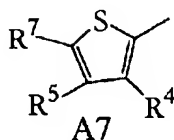
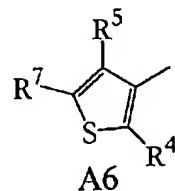
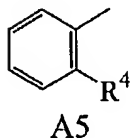
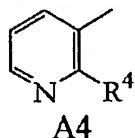
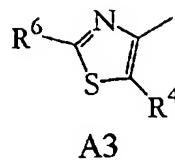
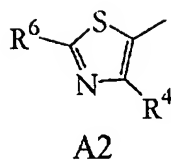
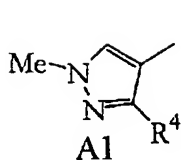
【課題を解決するための手段】本発明者らは、鋭意検討した結果、後記一般式 化2で示されるビフェニル化合

物が優れた植物病害防除効力を有することを見出し、本発明に至った。即ち、本発明は、一般式 化2

【化2】



【式中、R¹はC1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基、C2～C10アルケニル基、C2～C10アルキニル基、C3～C10シクロアルキル基、C5～C10シクロアルケニル基、C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基、C1～C10アルキルチオ基、C1～C10ハロアルキルチオ基または塩素原子を表わし、nは0～3の整数を表わし、R²はフッ素原子を表わし、mは0～5の整数を表わし、R³は同一または相異なり、各々ハロゲン原子、C1～C10アルキル基、C1～C10ハロアルキル基、C1～C10アルコキシアルキル基C1～C10アルコキシ基、C1～C10ハロアルコキシ基、C1～C10アルキルチオ基、C1～C10ハロアルキルチオ基、C2～C10アルケニル基、C2～C10アルキニル基、C3～C10シクロアルキル基、C5～C10シクロアルケニル基、C2～C6アルコキシカルボニル基、C3～C30トリアルキルシリル基を表わすか、あるいはmが2～5の整数である場合に隣りあう2つのR³でC3～C5アルキレン基、C3～C5ハロアルキレン基、C2～C4アルキレンオキシ基、C2～C4ハロアルキレンオキシ基、C1～C3アルキレンジオキシ基またはC1～C3ハロアルキレンジオキシ基を表わしてもよい。Aは以下のA1からA12



で示されるいずれかの基（ここで、 R^4 はハロゲン原子、 $C1 \sim C4$ アルキル基、 $C1 \sim C4$ ハロアルキル基またはシアノ基を表わし、 R^5 は水素原子、 $C1 \sim C4$ アルキル基または $C1 \sim C4$ ハロアルキル基を表わし、 R^6 は水素原子、ハロゲン原子、 $C1 \sim C4$ アルキル基、 $C1 \sim C4$ ハロアルキル基、アミノ基またはシアノ基を表わし、 R^7 は水素原子、 $C1 \sim C4$ アルキル基または $C1 \sim C4$ ハロアルキル基を表わし、 X は硫黄原子、 SO 基、 SO_2 基または CH_2 基を表わす。）を表わす。］で示されるビフェニル化合物（以下、本発明化合物と記す。）及びそれを有効成分として含有する農園芸用殺菌剤を提供する。

【0005】

【発明の実施の形態】本発明において、 R^1 で示される $C1 \sim C10$ アルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、1-メチルプロピル基、1, 1-ジメチルエチル基等があげられ、 R^1 で示される $C1 \sim C10$ ハロアルキル基としては、例えばトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、トリクロロメチル基、クロルジフルオロメチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロエチル基等のフッ素原子の置換した $C1 \sim C4$ アルキル基等があげられ、 R^1 で示される $C2 \sim C10$ アルケニル基としては、例えばビニル基、アリル基、1-メチル-2-プロペニル基等があげられ、 R^1 で示される $C2 \sim C10$ アルキニル基としては、例えばエチニル基、プロパルギル基、1-メチル-2-プロピニル基等の $C2 \sim C$

4アルキニル基があげられ、 R^1 で示される $C3 \sim C10$ シクロアルキル基としては、例えばシクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等があげられ、 R^1 で示される $C5 \sim C10$ シクロアルケニル基としては、例えばシクロペンテニル基、シクロヘキセニル基等があげられ、 R^1 で示される $C1 \sim C10$ アルコキシ基としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロピルオキシ基、イソプロピルオキシ基、ブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、1-メチルプロピルオキシ基、1, 1-ジメチルエトキシ基等があげられ、 R^1 で示される $C1 \sim C10$ ハロアルコキシ基としては、例えばトリフルオロメトキシ基、ジフルオロメトキシ基、フルオロメトキシ基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ基等のフッ素原子の置換した $C1 \sim C4$ アルコキシ基等があげられ、 R^1 で示される $C1 \sim C10$ アルキルチオ基としては、例えばメチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、ブチルチオ基、イソブチル基、1-メチルプロピルチオ基、1, 1-ジメチルエチルチオ基等があげられ、 R^3 で示される $C1 \sim C10$ ハロアルキルチオ基としては、例えばトリフルオロメチルチオ基、ジフルオロメチルチオ基、フルオロメチルチオ基、2, 2, 2-トリフルオロエチルチオ基等のフッ素原子で置換された $C1 \sim C4$ アルキルチオ基等があげられ、

【0006】 R^3 で示されるハロゲン原子は、塩素原子、臭素原子、フッ素原子またはヨウ素原子を意味し、 R^3 で示される $C1 \sim C10$ アルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブ

チル基、イソブチル基、1-メチルプロピル基、ベンチル基、1-メチルブチル基、1-エチルブチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、2, 2-ジメチルプロピル基、1, 2-ジメチルプロピル基、1, 1-ジメチルプロピル基、ヘキシル基、1-メチルペンチル基、1-エチルペンチル基、3, 3-ジメチルブチル基、ヘプチル基、3, 7-ジメチルオクチル基、 R^3 で示されるC1~C10ハロアルキル基としては、例えばトリフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、フルオロメチル基、トリクロルメチル基、クロルジフルオロメチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、1, 1, 2, 2-テトラフルオロエチル基等があげられ、 R^3 で示されるC1~C10アルコキシアルキル基としては、例えばメトキシメチル基、エトキシメチル基、イソプロピルオキシメチル基、メトキシプロピル基等があげられ、 R^3 で示されるC1~C10アルコキシ基としては、例えばメトキシ基、エトキシ基、1, 1-ジメチルエトキシ等があげられ、 R^3 で示されるC1~C10ハロアルコキシ基としては、例えばトリフルオロメトキシ基、ジフルオロメトキシ基、フルオロメトキシ基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ基等があげられ、 R^3 で示されるC1~C10アルキルチオ基としては、例えばメチルチオ基、エチルチオ基、ブチルチオ基等があげられ、 R^3 で示されるC1~C10ハロアルキルチオ基としては、例えばトリフルオロメチルチオ基、ジフルオロメチルチオ基、フルオロメチルチオ基、2, 2, 2-トリフルオロエチルチオ基等があげられ、 R^3 で示されるC2~C10アルケニル基としては、例えばビニル基、アリル基、1-メチル-2-プロペニル基、2-メチル-2-プロペニル基、2-ブテニル基、2-ペンテニル基、3-メチル-2-ブテニル基等があげられ、 R^3 で示されるC2~C10アルキニル基としては、例えばエチニル基、プロパルギル基、1-メチル-2-プロピニル基、2-ブチニル基等があげられ、 R^3 で示されるC3~C10シクロアルキル基としては、例えばシクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等があげられ、 R^3 で示されるC5~C10シクロアルケニル基としては、例えばシクロペンテニル基、シクロヘキセニル基等があげられ、 R^3 で示されるC2~C6アルコキシカルボニル基としては、例えばメトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等があげられ、 R^3 で示されるC3~C30トリアルキルシリル基としては、例えばトリメチルシリル基、トリエチルシリル基、 t -ブチルジメチルシリル基等があげられ、2つの R^3 で示されるC3~C5アルキレン基としては、例えばトリメチレン基、テトラメチレン基等があげられ、2つの R^3 で示さ

れるC3~C5アルキレン基としては、例えば2, 2-ジフルオロトリメチレン基等があげられ、2つの R^3 で示されるC2~C4アルキレンオキシ基としては、例えばエチレンオキシ基等があげられ、2つの R^3 で示されるC2~C4ハロアルキレンオキシ基としては、例えば1, 1, 2, 2-テトラフルオロエチレンオキシ基等があげられ、2つの R^3 で示されるC1~C3アルキレンジオキシ基としては、例えばメチレンジオキシ基、エチレンジオキシ基等があげられ、2つの R^3 で示されるC1~C3ハロアルキレンジオキシ基としては、フルオロメチレンジオキシ基、ジフルオロメチレンジオキシ基等があげられ、 R^4 および R^6 で示されるハロゲン原子は、塩素原子、臭素原子、フッ素原子または沃素原子を意味し、

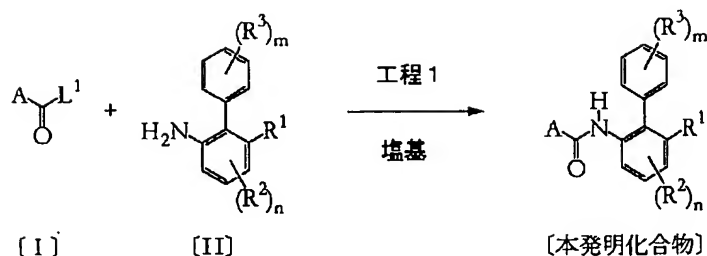
【0007】 R^4 、 R^5 、 R^6 および R^7 で示されるC1~C4アルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、1-メチルプロピル基等があげられ、 R^4 、 R^5 、 R^6 および R^7 で示されるC1~C4ハロアルキル基としては、例えばフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、トリクロルメチル基、クロルジフルオロメチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基等があげられる。

【0008】本発明化合物のうち、植物病害防除効力の点でより好ましい化合物の例として、N-(4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド(本発明化合物1-6)、N-(4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-6)、N-(4'-クロロ-6-メトキシ-ビフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド(本発明化合物1-60)またはN-(4'-クロロ-6-クロル-ビフェニル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物1-89)等があげられる。

【0009】本発明化合物は例えば、下記〔製造法A〕または〔製造法B〕にしたがって製造することができる。これらの製造法においては必要に応じ官能基を反応から保護するために保護基を用いることができる。

【0010】〔製造法A〕一般式〔I〕で示される化合物と一般式〔II〕で示される化合物とを、塩基の存在下に反応させる本発明化合物の製造法。

【化3】



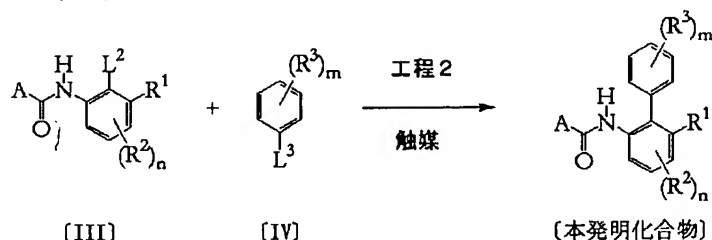
〔式中、R¹、R²、R³、A、mおよびnは前記と同じ意味を表わし、L¹は塩素原子、臭素原子等の脱離基を表わす。〕

スキーム 化3の工程1の反応における反応温度は通常-20～100℃の範囲であり、反応時間は通常0.2～24時間の範囲である。一般式〔I〕で示される化合物に対して、一般式〔II〕で示される化合物は通常0.2～5のモル比で使用され、塩基は通常1～10のモル比で使用される。工程1で使用される塩基としては、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム炭酸カルシウム、水素化ナトリウム等の無機塩基、カリウム-トープトキシド、ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド等のアルカリ金属アルコキシド類、ピリジン、トリエチルアミン、エチルジイソプロピルアミン、アニリン等の有機塩基、あるいはこれらの混合物があげられる。該反応は通常、溶媒中にて行われる。溶媒としては、例えば1,4-ジオキサン、テトラヒドロフラン、エチレングリコールジメチル

ルエーテル、トープチルメチルエーテル等のエーテル溶媒、n-ヘキサン、n-ヘプタン等の脂肪族炭化水素溶媒、トルエン等の芳香族炭化水素溶媒、モノクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素溶媒、ピリジン、トリエチルアミン、N、N-ジメチルアニリン等の有機塩基溶媒、酢酸ブチル、酢酸エチル等のエステル溶媒、アセトニトリル等のニトリル溶媒、N、N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、水、あるいはそれらの混合物があげられる。反応終了後の反応液は、反応液を水に注加した後、有機溶媒抽出、濃縮等の通常の後処理を行い、目的化合物を得ることができる。必要ならば再結晶、蒸留、クロマトグラフィー等により、目的化合物を精製することができる。

【0011】〔製造法B〕一般式〔III〕で示される化合物と一般式〔IV〕で示される化合物とを、触媒の存在下に反応させる本発明化合物の製造法。

〔化4〕



〔式中、R¹、R²、R³、A、mおよびnは前記と同じ意味を表わし、L²は塩素原子、臭素原子、沃素原子、トリフルオロメタンスルホニルオキシ基等の脱離基を表し、L³はB(OH)₂基、B(OR⁸)₂基またはSnR⁹₃基を表わし、R⁸は同一または相異なり、各々C1～C10アルキル基を表わすか、2つのR⁸で-CH₂CH₂-基または-C(CH₃)₂C(CH₃)₂-基を表わし、R⁹は同一または相異なり、各々C1～C10アルキル基を表す。〕

スキーム 化4の工程2の反応における反応温度は通常20～120℃の範囲であり、反応時間は通常1～24時間の範囲である。一般式〔III〕で示される化合物に対して、一般式〔IV〕で示される化合物は通常0.2～5のモル比で使用され、触媒は通常0.001～0.1のモル比で使用される。工程2で使用される触媒としては、例えば酢酸パラジウム(II)、テトラキス(トリフェニルフォスフィン)パラジウム(0)、

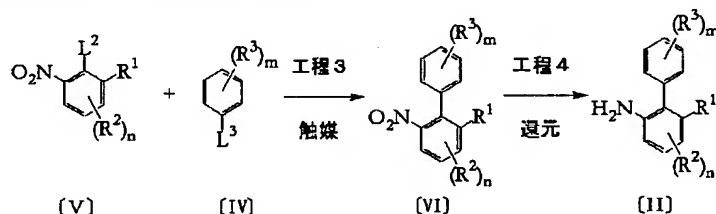
{1,1'-ビス(ジフェニルフォスフィノ)フェロセン}ジクロロパラジウム(II)塩化メチレン錯体、ビス(トリフェニルフォスフィン)パラジウム(II)ジクロライド等のパラジウム触媒があげられる。該反応は、更に塩基(例えば、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、炭酸カリウム、燐酸三カリウム、重曹等の無機塩基)や相関移動触媒(例えば、テトラブチルアンモニウムブロマイド、ベンジルトリエチルアンモニウムブロマイド等の4級アンモニウム塩)の存在下に行う場合がある。また、一般式〔IV〕で示される化合物におけるL³がSnR¹⁰₃基である場合は、更に酸化銅(II)、酸化銀(II)等の存在下に行う場合がある。該反応は通常、溶媒中にて行われる。溶媒としては、例えばメタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、イソプロパノール等のアルコール溶媒、1,4-ジオキサン、テトラヒドロフラン、エチレングリコールジメチルエーテル、トープチルメチルエーテル等のエーテル溶媒、n

ヘキサン、*n*-ヘプタン等の脂肪族炭化水素溶媒、トルエン等の芳香族炭化水素溶媒、アセトニトリル等のニトリル溶媒、*N,N*-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、水、あるいはそれらの混合物があげられる。該反応は、より具体的には例えば、*J. Org. Chem.*, 1997, 62, 7170-7173に記載の方法、*J. Org. Chem.*, 1995, 60, 7508-7510に記載の方法または*Angew. Chem. Int. Ed. Engl.*, 1986, 25, 508-524に記載の方法等に準じて行なう。反応終了後の反応液は、反応液を水に注加した後、有機溶媒抽出、濃縮等の通常の後処理を行い、目的化合物を得ること

とができる。必要ならば再結晶、蒸留、クロマトグラフィー等により、目的化合物を精製することができる。

【0012】一般式〔I〕で示される化合物は、例えば国際特許出願公開明細書WO93/11117号に記載の方法、欧州特許出願公開明細書EP-A-0545099号に記載の方法または欧州特許出願公開明細書EP-A-0589301号に記載の方法等の公知の方法で得ることができる。一般式〔II〕で示される化合物は例えば、下記のスキーム 化5で示される方法にしたがって製造することができる。

【化5】



〔式中、 L^2 、 L^3 、 R^1 、 R^2 、および R^3 は前記と同じ意味を表わす。〕

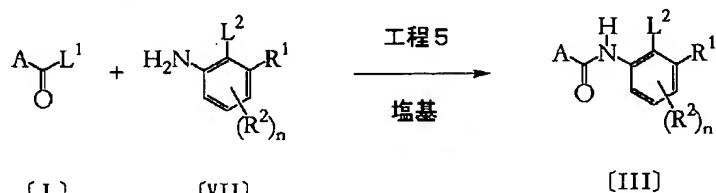
スキーム 化5の工程3の反応は、スキーム 化4の工程2と同様の方法により、一般式〔VI〕で示される化合物を得ることができる。

【0013】スキーム 化5の工程4は、例えば米国特許明細書US-5068437号に記載の方法、*J. Org. Chem.*, 1979, 44, 1233-123

6に記載の方法、第4版実験化学講座（有機合成VII I）178項に記載されている方法等に準じて、一般式〔II〕で示される化合物を得ることができる。

【0014】一般式〔III〕で示される化合物は例えば、下記のスキーム 化6で示される方法にしたがって製造することができる。

【化6】



〔式中、 L^1 、 L^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 A 、 m および n は前記と同じ意味を表わす。〕

スキーム 化6の工程5の反応は、スキーム 化5の工程1と同様の方法により、一般式〔III〕で示される化合物を得ることができる。

【0015】本発明化合物を農園芸用殺菌剤の有効成分として用いる場合、他の何らの成分も加えずそのまま用いてもよいが、通常は固体担体、液体担体、界面活性剤、その他の製剤用補助剤と混合して、乳剤、水和剤、顆粒水和剤、エマルジョン製剤、フロアブル製剤、粉剤、粒剤等に製剤して用いる。これらの製剤には有効成分として本発明化合物を、重量比で通常、0.1～90%含有する。かかる製剤化の際に用いられる、固体担体としては、例えばカオリンクレイ、アッタパルジャイトクレイ、ベントナイト、モンモリロナイト、酸性白土、パイロフィライト、タルク、珪藻土、方解石等の鉱物質、トウモロコシ穂軸粉、クルミ殻粉等の天然有機物、

尿素等の合成有機物、炭酸カルシウム、硫酸アンモニウム等の塩類、合成含水酸化珪素等の合成無機物等からなる微粉末あるいは粒状物等があげられ、液体担体としては、例えばキシレン、アルキルベンゼン、メチルナフタレン等の芳香族炭化水素類、イソプロパノール、エチレングリコール、プロピレングリコール、セロソルブ等のアルコール類、アセトン、シクロヘキサノン、イソホロン等のケトン類、ダイズ油、綿実油等の植物油、石油系脂肪族炭化水素、エステル類、ジメチルスルホキシド、アセトニトリル、水等があげられる。界面活性剤としては、例えばアルキル硫酸エステル塩、アルキル（アリアル）スルホン酸塩、ジアルキルスルホコハク酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリアルエーテルリン酸エステル塩、リグニンスルホン酸塩、ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物等の陰イオン界面活性剤、ポリオキシエチレンアルキルアリアルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルポリオキシプロピレンブロックコポリマー、ソ

ルビタン脂肪酸エステル等の非イオン界面活性剤等があげられる。製剤用補助剤としては、例えばポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン等の水溶性高分子、アラビアガム、アルギン酸およびその塩、CMC（カルボキシメチルセルロース）、ゼンサンガム、等の多糖類、アルミニウムマグネシウムシリケート、アルミナゾル等の無機物、防腐剤、着色剤、PAP（酸性リン酸イソプロピル）、BHT等の安定化剤等があげられる。本発明化合物の施用方法としては、具体的には茎葉散布、土壌処理、種子消毒等があげられ、さらに、通常、当業者が利用するどのような施用方法にても用いることができる。

【0016】本発明化合物を農園芸用殺菌剤の有効成分として用いる場合、その有効成分の施用量は、対象植物（作物等）の種類、対象病害の種類、病害の発生程度、製剤形態、施用方法、施用時期、気象条件等によって変化し得るが、1アールあたり通常0.01～50g、好ましくは0.05～10gである。乳剤、水和剤、懸濁剤等を水で希釈して施用する場合、その施用濃度は、0.0001～3%、好ましくは0.0005～1%であり、粉剤、粒剤等はなんら希釈することなくそのまま施用する。

【0017】本発明化合物は、畑地、水田、果樹園、茶園、牧草地、芝生地等の農園芸用殺菌剤として用いることができ、他の農園芸用殺菌剤と混合して用いることにより、殺菌効力の増強をも期待できる。混合し得る他の農園芸用殺菌剤としては、たとえば、プロピコナゾール、トリアジメノール、プロクロラズ、ペンコナゾール、テブコナゾール、フルシラゾール、ジニコナゾール、プロムコナゾール、エボキシコナゾール、ジフェノコナゾール、シプロコナゾール、メトコナゾール、トリフルミゾール、テトラコナゾール、マイクロブタニル、フェンブコナゾール、ヘキサコナゾール、フルキンコナゾール、トリテコナゾール、ビテルタノール、イマザリル及びフルトリアホル等のアゾール系殺菌化合物、フェンプロビモルフ、トリデモルフ及びフェンプロビジン等の環状アミン系殺菌化合物、カルベンダジム、ベノミル、チアベンダゾール、チオファネートメチル等のベンズイミダゾール系殺菌化合物、プロシミドン、シプロディニル、ピリメタニル、ジエトフェンカルブ、チウラム、フルアジナム、マンコゼブ、イプロジオン、ビンクロゾリン、クロロタロニル、キャプタン、メバニピリム、フェンピクロニル、フルジオキソニル、ジクロフルアニド、フォルベット、クレソキシムメチル、アゾキシストロビン、トリフロキシストロビン、ピコキシストロビン、N-メチル- α -メトキシイミノ-2-[(2,5-ジメチルフェノキシ)メチル]フェニルアセトアミド、スピロキサミン、キノキシフェン、フェンヘキサミド、ファモキサドン、フェナミドン（RP-407213）、イプロヴァリカルブ等があげられる。

【0018】本発明化合物は、他の農園芸用殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、除草剤、植物生長調節剤、肥料と混用または併用することもできる。かかる殺虫剤及び／または殺ダニ剤及び／または殺線虫剤としては、例えばフェニトロチオン〔O, O-ジメチル O-(3-メチル-4-ニトロフェニル)ホスホロチオエート〕、フェニチオン〔O, O-ジメチル O-(3-メチル-4-(メチルチオ)フェニル)ホスホロチオエート〕、ダイアジノン〔O, O-ジエチル O-2-イソプロピル-6-メチルピリミジン-4-イルホスホロチオエート〕、クロルピリホス〔O, O-ジエチル O-3,5,6-トリクロロ-2-ピリジルホスホロチオエート〕、アセフェート〔O, S-ジメチルアセチルホスホラミドチオエート〕、メチダチオン〔S-2,3-ジヒドロ-5-メトキシ-2-オキソ-1,3,4-チアジアゾール-3-イルメチル O, O-ジメチルホスホロジチオエート〕、ジスルホトン〔O, O-ジエチル S-2-エチルチオエチルホスホロチオエート〕、DDVP〔2,2-ジクロロビニルジメチルホスフェート〕、スルプロホス〔O-エチル O-4-(メチルチオ)フェニル S-プロピルホスホロジチオエート〕、シアノホス〔O-4-シアノフェニル O, O-ジメチルホスホロチオエート〕、ジオキサベンゾホス〔2-メトキシ-4H-1,3,2-ベンゾジオキサホスフィニン-2-スルフィド〕、ジメトエート〔O, O-ジメチル S-(N-メチルカルバモイルメチル)ジチオホスフェート〕、フェントエート〔エチル 2-ジメトキシホスフィノチオイルチオ(フェニル)アセテート〕、マラチオン〔ジエチル(ジメトキシホスフィノチオイルチオ)サクシネート〕、トリクロロホン〔ジメチル 2,2,2-トリクロロ-1-ヒドロキシエチルホスホネート〕、アジンホスメチル〔S-3,4-ジヒドロ-4-オキソ-1,2,3-ベンゾトリアジン-3-イルメチル O, O-ジメチルホスホロジチオエート〕、モノクロトホス〔ジメチル(E)-1-メチル-2-(メチルカルバモイル)ビニルホスフェート〕、エチオン〔O, O, O', O'-テトラエチル S, S'-メチレンビス(ホスホロジチオエート)〕、ホスチアゼート〔N-(O-メチル-S-sec-ブチル)ホスホリルチアゾリジン-2-オン〕等の有機リン系化合物、BPMC〔2-sec-ブチルフェニルメチルカルバメート〕、ペンフラカルブ〔エチル N-(2,3-ジヒドロ-2,2-ジメチルベンゾフラン-7-イルオキシカルボニル(メチル)アミノチオ)-N-イソプロピル- β -アラニネート〕、プロボキスル〔2-イソプロボキシフェニル N-メチルカルバメート〕、カルボスルファン〔2,3-ジヒドロ-2,2-ジメチル-7-ベンゾ〔b〕フラニル N-ジブチルアミノチオ-N-メチルカルバメート〕、カルバリル〔1-ナフチル N-メチルカルバメート〕、メソミル〔S-メチル-N-[(メチルカルバ

モイル) オキシ) チオアセトイミデート)、エチオフェンカルブ〔2-(エチルチオメチル) フェニルメチルカーバメート)、アルジカルブ〔2-メチル-2-(メチルチオ) プロピオンアルデヒド O-メチルカルバモイルオキシム)、オキサミル〔N, N-ジメチル-2-メチルカルバモイルオキシイミノ-2-(メチルチオ) アセタミド)、フェノチオカルブ〔S-4-フェノキシブチル-N, N-ジメチルチオカーバメート等のカーバメート系化合物、エトフェンプロックス〔2-(4-エトキシフェニル)-2-メチルプロピル-3-フェノキシベンジルエーテル)、フェンバレレート〔(RS)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (RS)-2-(4-クロロフェニル)-3-メチルブチレート)、エスフェンバレレート〔(S)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (S)-2-(4-クロロフェニル)-3-メチルブチレート)、フェンプロパトリン〔(RS)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル 2, 2, 3, 3-テトラメチルシクロプロパンカルボキシレート)、シベルメトリン〔(RS)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (1RS, 3RS)-3-(2, 2-ジクロロビニル)-2, 2-ジメチルシクロプロパンカルボキシレート)、ベルメトリン〔3-フェノキシベンジル (1RS, 3RS)-3-(2, 2-ジクロロビニル)-2, 2-メチルシクロプロパンカルボキシレート)、シハロトリン〔(RS)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (Z)-(1RS, 3RS)-3-(2-クロロ-3, 3, 3-トリフルオロプロペニル)-2, 2-ジメチルシクロプロパンカルボキシレート)、デルタメトリン〔(S)- α -シアノ-m-フェノキシベンジル (1R, 3R)-3-(2, 2-ジブロモビニル)-2, 2-ジメチルシクロプロパンカルボキシレート)、シクロプロスリン〔(RS)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (RS)-2, 2-ジクロロ-1-(4-エトキシフェニル) シクロプロパンカルボキシレート)、フルバリネート〔 α -シアノ-3-フェノキシベンジル N-(2-クロロ- α , α , α -トリフルオロ-p-トリル)-D-バリネート)、ピフェンスリン〔2-メチルピフェニル-3-イルメチル (Z)-(1RS)-cis-3-(2-クロロ-3, 3, 3-トリフルオロプロパ-1-エニル)-2, 2-ジメチルシクロプロパンカルボキシレート)、アクリナスリン〔(1R-{1 α (S*), 3 α (Z)})-2, 2-ジメチル-3-(3-オキソ-3-(2, 2, 2-トリフルオロ-1-(トリフルオロメチル) エトキシ-1-プロペニル) シクロプロパンカルボン酸シアノ(3-フェノキシフェニル) メチルエステル)、2-メチル-2-(4-ブロモジフルオロメトキシフェニル) プロピル(3-フェノキシベンジル) エーテル、トラロメスリン〔(S)- α -シアノ-3-フェノキシベンジル (1R)-シス-3-(1, 2, 2, 2-テ

ラブロモエチル)-2, 2-ジメチルシクロプロパンカルボキシレート)、シラフルオフェン〔(4-エトキシフェニル(3-(4-フルオロ-3-フェノキシフェニル) プロピル) ジメチルシラン) 等のピレスロイド化合物、ブプロフェジン(2- α -ブチルイミノ-3-イソプロピル-5-フェニル-1, 3, 5-トリアジアジナン-4-オン) 等のチアジアジン誘導体、ニトロイミダゾリジン誘導体、カルタップ〔S, S'-(2-ジメチルアミノトリメチレン) ビス(チオカーバメート)、チオシクラム〔N, N-ジメチル-1, 2, 3-トリチアン-5-イルアミン)、ペンスルタップ〔S, S'-(2-ジメチルアミノトリメチレン) ジ(ベンゼンチオサルフォネート) 等のネライストキシン誘導体、N-シアノ-N'-メチル-N'-(6-クロロ-3-ピリジルメチル) アセトアミジン等のN-シアノアミジン誘導体、エンドスルファン〔6, 7, 8, 9, 10, 10-ヘキサクロロ-1, 5, 5a, 6, 9, 9a-ヘキサヒドロ-6, 9-メタノ-2, 4, 3-ベンゾジオキサチエピンオキサイド)、gamma-BHC(1, 2, 3, 4, 5, 6-ヘキサクロロシクロヘキサン)、1, 1-ビス(クロロフェニル)-2, 2, 2-トリクロロエタノール等の塩素化炭化水素化合物、クロルフルアズロン〔1-(3, 5-ジクロロ-4-(3-クロロ-5-トリフルオロメチルピリジン-2-イルオキシ) フェニル)-3-(2, 6-ジフルオロベンゾイル) ウレア)、テフルベンズロン〔1-(3, 5-ジクロロ-2, 4-ジフルオロフェニル)-3-(2, 6-ジフルオロベンゾイル) ウレア)、フルフェノクスロン〔1-(4-(2-クロロ-4-トリフルオロメチルフェノキシ)-2-フルオロフェニル)-3-(2, 6-ジフルオロベンゾイル) ウレア) 等のベンゾイルフェニルウレア系化合物、アミトラズ〔N, N'-(メチルイミノ) ジメチリジン〕ジ-2, 4-キシリジン)、クロルジメホルム〔N'-(4-クロロ-2-メチルフェニル)-N, N-ジメチルメタニダミド) 等のホルムアミジン誘導体、ジアフェンチウロン〔N-(2, 6-ジイソプロピル-4-フェノキシフェニル)-N'- α -ブチルカルボジイミド) 等のチオ尿素誘導体、フェニルピラゾール系化合物、テブフェノジド〔N- α -ブチル-N'-(4-エチルベンゾイル)-3, 5-ジメチルベンゾヒドラジド)、4-ブロモ-2-(4-クロロフェニル)-1-エトキシメチル-5-トリフルオロメチルピロール-3-カルボニトリル、ブロモプロピレート〔イソプロピル 4, 4'-ジブロモベンジレート)、テトラジホン〔4-クロロフェニル 2, 4, 5-トリクロロフェニルスルホン)、キノメチオネート〔S, S-6-メチルキノキサリン-2, 3-ジイルジチオカルボネート)、プロバルゲイト〔2-(4- α -ブチルフェノキシ) シクロヘキシル プロパ-2-イルスルファイト)、フェンブタティン オキシド〔ビス〔トリス(2

ーメチル-2-フェニルプロピル) ティン) オキシド)、ヘキシチアゾクス〔(4RS, 5RS)-5-(4-クロロフェニル)-N-クロロヘキシル-4-メチル-2-オキソ-1, 3-チアゾリジン-3-カルボキサミド)、クロフェンテジン〔3, 6-ビス(2-クロロフェニル)-1, 2, 4, 5-テトラジン、ピリダチオベン〔2-ト-ブチル-5-(4-ト-ブチルベンジルチオ)-4-クロロピリダジン-3(2H)-オン〕、フェニルピロキシメート〔ト-ブチル(E)-4-〔(1, 3-ジメチル-5-フェノキシピラゾール-4-イル)メチレンアミノオキシメチル〕ベンゾエート〕、テブフェンピラド〔N-4-ト-ブチルベンジル-4-クロロ-3-エチル-1-メチル-5-ピラゾールカルボキサミド〕、ポリナクチンコンプレックス〔テトラナクチン、ジナクチン、トリナクチン〕、ミルベメクチン、アベルメクチン、イバーメクチン、アザジラクチン(AZAD)、ピリミジフェン〔5-クロロ-N-(2-(4-(2-エトキシエチル)-2, 3-ジメチルフェノキシ)エチル)-6-エチルピリミジン-4-アミン、ピメトロジン〔2, 3, 4, 5-テトラヒドロ-3-オキソ-4-〔(ピリジン-3-イル)-メチレンアミノ〕-6-メチル-1, 2, 4-トリアジン等〕があげられる。

【0019】本発明化合物により防除することができる植物病害としては例えば以下のような病害をあげることができる。

イネのいもち病(*Pyricularia oryzae*)、ごま葉枯病(*Cochliobolus miyabeanus*)、紋枯病(*Rhizoctonia solani*)、ムギ類のうどんこ病(*Erysiphe graminis*)、赤かび病(*Gibberella zeae*)、さび病(*Puccinia striiformis*, *P. graminis*, *P. recondita*, *P. hordei*)、雪腐病(*Typhula* sp., *Micronectriella nivalis*)、裸黒穂病(*Ustilago tritici*, *U. nuda*)、なまぐさ黒穂病(*Tilletia caries*)、眼紋病(*Pseudocercospora herpotrichoides*)、雲形病(*Rhynchosporium secalis*)、葉枯病(*Septoria tritici*)、ふ枯病(*Leptosphaeria nodorum*)、カンキツ類の黒点病(*Diaporthe citri*)、そうか病(*Elsinoe fawcetti*)、果実腐敗病(*Penicillium digitatum*, *P. italicum*)、リンゴのモニリア病(*Sclerotinia mali*)、腐らん病(*Valsa mali*)、うどんこ病(*Podosphaera leucotricha*)、斑点落葉病(*Alternaria mali*)、黒星病(*Venturia inaequalis*)、ナシの黒星病(*Venturia nashicola*, *V. pirina*)、黒斑病(*Alternaria kikuchiana*)、赤星病(*Gymnosporangium haraeaeum*)、モモの灰星病(*Sclerotinia cinerea*)、黒星病(*Cladosporium carpophilum*)、フォモプシス腐敗病(*Phomopsis* sp.)、ブドウの黒とう病(*Elsinoe ampelina*)、晩腐病(*Glomerella cingulata*)、うどんこ病(*Uncinula necator*)、さび病(*Phakopsora ampelopsidis*)、ブラックロット病(*Guignardia bidwellii*)、べと病(*Plasmopara*

ra viticola)、カキの炭そ病(*Gloeosporium kaki*)、落葉病(*Cercospora kaki*, *Mycosphaerella nawae*)、ウリ類の炭そ病(*Colletotrichum lagenarium*)、うどんこ病(*Sphaerotheca fuliginea*)、つる枯病(*Mycosphaerella melonis*)、つる割病(*Fusarium oxysporum*)、べと病(*Pseudoperonospora cubensis*)、疫病(*Phytophthora* sp.)、苗立枯病(*Pythium* sp.)、トマトの輪紋病(*Alternaria solani*)、葉かび病(*Cladosporium fulvum*)、疫病(*Phytophthora infestans*)、ナスの褐紋病(*Phomopsis vexans*)、うどんこ病(*Erysiphe cichoracearum*)、アブラナ科野菜の黒斑病(*Alternaria japonica*)、白斑病(*Cercospora brassicae*)、ネギのさび病(*Puccinia allii*)、ダイズの紫斑病(*Cercospora kikuchii*)、黒とう病(*Elsinoe glycines*)、黒点病(*Diaporthe phaseolorum* var. *sojae*)、インゲンの炭そ病(*Colletotrichum lindemthianum*)、ラッカセイの黒斑病(*Cercospora personata*)、褐斑病(*Cercospora arachidicola*)、エンドウのうどんこ病(*Erysiphe pisi*)、ジャガイモの夏疫病(*Alternaria solani*)、疫病(*Phytophthora infestans*)、イチゴのうどんこ病(*Sphaerotheca humuli*)、チャの網もち病(*Exobasidium reticulatum*)、白星病(*Elsinoe leucospila*)、タバコの赤星病(*Alternaria longipes*)、うどんこ病(*Erysiphe cichoracearum*)、炭そ病(*Colletotrichum tabacum*)、べと病(*Peronospora tabacina*)、疫病(*Phytophthora nicotianae*)、テンサイの褐斑病(*Cercospora beticola*)、バラの黒星病(*Diplocarpon rosae*)、うどんこ病(*Sphaerotheca pannosa*)、キクの褐斑病(*Septoria chrysanthemi-indici*)、白さび病(*Puccinia horiana*)、種々の作物の灰色かび病(*Botrytis cinerea*)、菌核病(*Sclerotinia sclerotiorum*)等

【0020】

【実施例】以下、本発明を製造例、製剤例及び試験例等によりさらに詳しく説明するが、本発明は、これらの例のみに限定されるものではない。まず、本発明化合物の製造例および本発明化合物の製造中間体の製造例を、各々製造例および参考製造例にて示す。尚、本発明化合物の番号は後記表1～表21に記載の化合物番号である。

【0021】製造例1

N-(2-ブロモ-3-メチル-フェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド300mg(0.828mmol)、4-クロロフェニルボロン酸146mg(1.07mmol)、燐酸三カリウム水和物880mg(4.16mmol)、{1, 1'-ビス(ジフェニルフォスフィノ)フェロセン}ジクロロパラジウム(II)塩化メチレン錯体34mg(0.042mmol)およびエチレングリコールジメチルエーテル4.5mlを混合後、80℃にて3時間攪拌した。混合物を室温まで冷却後、濾過し、減圧下において溶媒を留去した。残渣をシリカゲ

ルカラムクロマトグラフィー (n-ヘキサン:酢酸エチル=2:8から0:10で溶出) に付し、N-(4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド (本発明化合物1-6) 139mgを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.16 (1H, d, $J=8.2\text{Hz}$), 7.78 (1H, s), 7.44-7.48 (2H, m), 7.32 (1H, t, $J=7.9\text{Hz}$), 7.22 (1H, s), 7.14-7.17 (2H, m), 7.09 (1H, d, $J=7.5\text{Hz}$), 3.92 (3H, s), 2.03 (3H, s)

【0022】製造例2~5

製造例1と同様の方法で下記の目的物を得た。

N-(6-メチル-ビフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド (本発明化合物1-1)

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.24 (1H, d, $J=8.2\text{Hz}$), 7.67 (1H, s), 7.41-7.51 (3H, m), 7.20-7.33 (4H, m), 7.06 (1H, d, $J=7.6\text{Hz}$), 3.89 (3H, s), 2.03 (3H, s)

【0023】N-(4'-フルオロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド (本発明化合物1-5)

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.20 (1H, d, $J=8.2\text{Hz}$), 7.79 (1H, s), 7.27-7.40 (2H, m), 7.18-7.20 (4H, m), 7.09 (1H, d, $J=7.6\text{Hz}$), 3.92 (3H, s), 2.02 (3H, s)

【0024】N-(4'-トリフルオロメチル-6-メチル-ビフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド (本発明化合物1-9)

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.17 (1H, d, $J=8.2\text{Hz}$), 7.80 (1H, s), 7.75 (2H, d, $J=8.2\text{Hz}$), 7.3-7.4 (3H, m), 7.1-7.2 (2H, m), 3.91 (3H, s), 2.03 (3H, s)

【0025】N-(4'-メチル-6-メチル-ビフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド (本発明化合物1-8)

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.24 (1H, d, $J=8.2\text{Hz}$),

7.68 (1H, s), 7.26-7.35 (4H, m), 7.06-7.13 (3H, m), 3.90 (3H, s), 2.41 (3H, s), 2.04 (3H, s)

【0026】製造例6

2-アミノ-4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イルアミン220mg (1mmol)、トリエチルアミン120mg (1.2mmol) およびTHF3mlを混合後、2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボニルクロライド230mg (1mmol)を氷冷下にて滴下し、混合物を室温で約1時間攪拌した。混合物を酢酸エチルで抽出し、該有機層を水洗、乾燥 (硫酸ナトリウム) した後、減圧下において溶媒を留去し、残渣をn-ヘキサンで洗浄後ろ過して、N-(4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド (本発明化合物2-6) 260mgを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.19 (1H, d, $J=8.2\text{Hz}$), 7.47 (2H, d, $J=8.4\text{Hz}$), 7.3-7.4 (2H, m), 7.1-7.2 (3H, m), 2.70 (3H, s), 2.04 (3H, s)

【0027】製造例7および8

製造例6と同様の方法で下記の目的物を得た。

2-クロロ-N-(4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル)-ニコチンアミド (本発明化合物4-3)

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.43 (1H, dd, $J=6.6, 1.7\text{Hz}$), 8.33 (1H, d, $J=8.3\text{Hz}$), 8.17 (1H, dd, $J=9.5, 1.8\text{Hz}$), 7.99 (1H, s), 7.46-7.49 (2H, m), 7.30-7.43 (2H, m), 7.19-7.22 (2H, m), 7.14 (1H, d, $J=7.7\text{Hz}$), 2.05 (3H, s)

【0028】N-(4'-クロロ-6-メチル-ビフェニル-2-イル)-2-トリフルオロメチル-ベンズアミド (本発明化合物5-5)

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.21 (1H, d, $J=8.3\text{Hz}$), 7.66 (1H, d, $J=9.0\text{Hz}$), 7.30-7.58 (6H, m), 7.10-7.25 (3H, m), 6.95 (1H, s), 2.04 (3H, s)

【0029】製造例9

N-(2-ブromo-3-メチル-フェニル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド300mg (0.77mmol)、4-フルオロフェニルボロン酸140mg (1.0mmol)、磷酸三カリウム水和物820mg (3.85mmol)

1)、{1, 1'-ビス(ジフェニルフォスフィノ)フェロセン}ジクロロパラジウム(II)塩化メチレン錯体31mg(0.039mmol)およびエチレングリコールジメチルエーテル5mlを混合後、80℃にて3時間攪拌した。混合物を室温まで冷却後、濾過し、減圧下において溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(n-ヘキサン:酢酸エチル=2:8から0:10で溶出)に付し、N-(4'-フルオロ-6-メチル-2-ピフェニル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-5)150mgを得た。

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.21(1H, d, J=8.3Hz)、7.30-7.36(2H, m)、7.11-7.21(5H, m)、2.69(3H, s)、2.03(3H, s)

【0030】製造例10~13

製造例9と同様の方法で下記の目的物を得た。

N-(4'-トリフルオロメチル-6-メチル-2-ピフェニル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-9)

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.2-8.3(1H, m)、7.75-7.79(2H, m)、7.33-7.45(3H, m)、7.18-7.25(3H, m)、2.68(3H, s)、2.04(3H, s)

【0031】N-(6-メチル-2-ピフェニル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-1)

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.10-8.25(1H, m)、7.30-7.52(5H, m)、7.19-7.25(2H, m)、7.13(1H, d, J=7.5Hz)、2.68(3H, s)、2.05(3H, s)

【0032】N-(4'-メチル-6-メチル-2-ピフェニル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-8)

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.25(1H, d, J=8.2Hz)、7.45(1H, s)、7.26-7.45(3H, m)、7.07-7.18(3H, m)、2.68(3H, s)、2.41(3H, s)、2.05(3H, s)

【0033】N-(4'-メトキシ-6-メチル-2-ピフェニル-2-イル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド(本発明化合物2-10)

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.25(1H, d, J=7.4Hz)、7.45(1H, s)、7.26-7.34(1H, m)、7.10-7.14(3H, m)、7.00-7.05(2H, m)、3.86(3H, s)、2.69(3H, s)、2.05(3H, s)

【0034】製造例14

N-(2-ブromo-3-メトキシフェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド250mg(0.66mmol)、4-クロロフェニルボロン酸135mg(0.86mmol)、燐酸三カリウム水和物700mg(3.31mmol)、{1, 1'-ビス(ジフェニルフォスフィノ)フェロセン}ジクロロパラジウム(II)塩化メチレン錯体27mg(0.033mmol)およびエチレングリコールジメチルエーテル4mlを混合後、80℃にて3時間攪拌した。混合物を室温まで冷却後、濾過し、減圧下において溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(n-ヘキサン:酢酸エチル=2:8から0:10で溶出)に付し、N-(4'-クロロ-6-メトキシ-2-ピフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド(本発明化合物1-60)185mgを得た。

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 7.97(1H, d, J=8.4Hz)、7.77(1H, s)、7.43-7.45(2H, m)、7.37(1H, t, J=8.3Hz)、7.29(1H, s)、7.18-7.25(2H, m)、6.80(1H, d, J=8.2Hz)、3.92(3H, s)、3.73(3H, s)

【0035】製造例15

4'-クロロ-6-クロロ-2-ピフェニル-2-イルアミン500mg(2.1mmol)、トリエチルアミン250mg(2.5mmol)、およびTHF5mlを混合後、1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボニルクロライド450mg(2.1mmol)を氷冷下にて滴下し、混合物を室温で約1時間攪拌した。混合物を酢酸エチルで抽出し、該有機層を水洗、乾燥(硫酸ナトリウム)した後、減圧下において溶媒を留去し、残渣を薄層シリカゲルカラムクロマトグラフィー(n-ヘキサン:酢酸エチル=2:1で溶出)に付して、N-(4'-クロロ-6-クロロ-2-ピフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド(本発明化合物1-89)110mgを得た。

¹H-NMR(CDCl₃, TMS)

δ(ppm): 8.32(1H, d, J=8.1Hz)、7.80(1H, s)、7.47-7.50(2H, m)、7.19-7.40(5H, m)、3.93(3H, s)

【0036】参考製造例1

1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸1.35g (6.95mmol)、塩化チオニル1.24g (10.4mmol)、ジメチルホルムアミド25mg (0.34mmol) およびトルエン5.4mlの混合物を90℃で1時間保温し、冷却後減圧下で濃縮して1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボニルクロライドを得た。これと2-ブロモ-3-メチルアニリン1.42g (7.63mmol)、ジイソプロピルエチルアミン2.69g (14.5mmol) およびトルエン10mlの混合物に0℃で滴下し、0℃で30分ついで室温で5時間攪拌した。混合物を酢酸エチルで抽出し、該有機層を5%希塩酸、水、3%苛性ソーダ水、飽和塩化アンモニウム水および飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、濃縮し、得られた粗結晶を冷却した α -ブチルメチルエーテルおよびヘキサンで洗浄後乾燥してN-(2-ブロモ-3-メチルフェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド2.22gを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.21 (2H, d), 8.00 (1H, s), 7.22~7.27 (1H, m), 7.05 (1H, d, $J=7.6\text{ Hz}$), 4.02 (3H, s), 2.44 (3H, s)

【0037】参考製造例2

2-ブロモ-3-メチルニトロベンゼン2.0g (9.26mmol)、4-クロロフェニルボロン酸1.51g (11.1mmol)、燐酸三カリウム水和物9.8g (46.2mmol)、{1,1'-ビス(ジフェニルフォスフィノ)フェロセン}ジクロロパラジウム(I)塩化メチレン錯体0.38g (0.46mmol) およびエチレングリコールジメチルエーテル30mlを混合後、80℃にて3時間攪拌した。混合物を室温まで冷却後、濾過し、減圧下において溶媒を留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (n-ヘキサン:酢酸エチル=2:8から0:10で溶出) に付し、4'-クロロ-6-メチル-2-ニトロビフェニル1.81gを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 7.7 (1H, d), 7.5 (1H, d), 7.40~7.42 (3H, m), 7.11~7.14 (2H, m), 2.13 (3H, s)

【0038】参考製造例3

4'-クロロ-6-メチル-2-ニトロビフェニル (参考製造例2) 11.47g (46.33mmol)、5% Pt/炭素0.35g およびモノクロルベンゼン120mlの混合物に、80~100℃で抱水ヒドラジン (5.87g, 116mmol) を滴下後、同温度で2.5時間攪拌した。得られた混合物を室温まで冷却

し、クロロホルムおよび水を加え、セライトをブレイクしたグラスフィルターで不溶物を濾別した。ろ液の有機層を分離し、減圧下において溶媒を留去し、残渣をn-ヘキサンで洗浄後、濾別し乾燥して、4'-クロロ-6-メチル-2-ビフェニル-2-イルアミン8.27gを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 7.43~7.46 (2H, m), 7.18~7.25 (2H, m), 7.06 (1H, t, $J=7.8\text{ Hz}$), 6.69 (1H, d, $J=7.5\text{ Hz}$), 6.62 (1H, d, $J=7.9\text{ Hz}$), 3.41 (2H, s), 1.99 (3H, s)

【0039】参考製造例4

2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸10.55g (50.0mmol)、塩化チオニル9.00g (75.0mmol)、およびトルエン100mlの混合物を50~60℃で1時間ついで80℃で4時間保温し、冷却後減圧下で濃縮して2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボニルクロライド11.15gを得た。この2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボニルクロライド2.34g (10.2mmol) を2-ブロモ-3-メチルアニリン2.0g (10.2mmol)、トリエチルアミン1.24g (12.2mmol) およびテトラヒドロフラン20mlの混合物に0℃で仕込み、0℃で30分ついで室温で1~2時間攪拌した。混合物を酢酸エチルで抽出し、該有機層を水洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、濃縮し得られた粗結晶をn-ヘキサンで洗浄後乾燥してN-(2-ブロモ-3-メチルフェニル)-2-メチル-4-トリフルオロメチル-チアゾール-5-カルボン酸アミド2.90gを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

δ (ppm): 8.32 (1H, s), 8.20 (1H, d, $J=8.2\text{ Hz}$), 7.26 (1H, t, $J=7.8\text{ Hz}$), 7.09 (1H, d, $J=7.0\text{ Hz}$), 2.78 (3H, s), 2.45 (3H, s)

【0040】参考製造例5

1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸8.0g (17.5mmol)、塩化チオニル7.4g (62.0mmol)、およびトルエン100mlの混合物を50~60℃で1時間ついで80℃で4時間保温し、冷却後減圧下で濃縮して1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボニルクロライド6.0gを得た。この1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボニルクロライド0.37g (1.73mmol) を2-ブロモ-3-メトキシアニリン0.35g (1.73mmol)、トリエチルアミン0.21g (2.10mmol) およびテトラヒドロフラン4mlの混合物

に氷冷下にて滴下し、混合物を室温で約1時間攪拌した。混合物を酢酸エチルで抽出し、該有機層を水洗、乾燥（硫酸ナトリウム）した後、減圧下において溶媒を除去し、残渣をn-ヘキサンで洗浄後濾過して、N-(2-ブロモ-3-メトキシフェニル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド0.47gを得た。

$^1\text{H-NMR}$ (CDCl_3 , TMS)

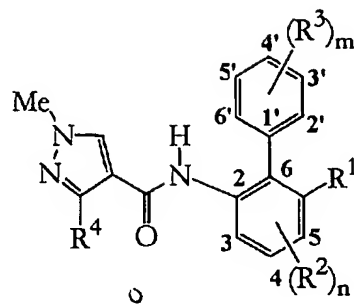
δ (ppm): 8.23 (1H, s), 8.06 (1H, d, $J=8.7\text{Hz}$), 7.99 (1H, s), 7.31 (1H, t, $J=8.3\text{Hz}$), 6.72 (1H, d, $J=9.6\text{Hz}$), 4.01 (3H, s), 3.92 (3H, s)

【0041】次に本発明化合物の例を化合物番号と共に

表1～表21に示す。

一般式 化7

【化7】



で示される化合物。

【表1】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
1-1	Me	-	-	CF ₃
1-2	Me	-	2'-F	CF ₃
1-3	Me	-	3'-F	CF ₃
1-4	Me	-	3'-Cl	CF ₃
1-5	Me	-	4'-F	CF ₃
1-6	Me	-	4'-Cl	CF ₃
1-7	Me	-	4'-Br	CF ₃
1-8	Me	-	4'-Me	CF ₃
1-9	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-10	Me	-	4'-OMe	CF ₃
1-11	Me	-	4'-OCF ₃	CF ₃
1-12	Me	-	4'-SMe	CF ₃
1-13	Me	-	3', 4'-diCl	CF ₃
1-14	Me	-	3'-Me-4'-Cl	CF ₃
1-15	Me	-	3'-F-4'-Cl	CF ₃
1-16	Me	-	3'-Cl-4'-CF ₃	CF ₃
1-17	Me	-	2', 4'-diF	CF ₃
1-18	Me	-	2', 5'-diF	CF ₃
1-19	Me	-	4'-SiMe ₃	CF ₃
1-20	Me	-	-	CHF ₂
1-21	Me	-	4'-F	CHF ₂
1-22	Me	-	4'-Cl	CHF ₂
1-23	Me	-	4'-Me	CHF ₂
1-24	Me	-	4'-CF ₃	CHF ₂
1-25	Et	-	-	CF ₃

【表2】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
1-26	Et	-	4'-F	CF ₃
1-27	Et	-	4'-Cl	CF ₃
1-28	Et	-	4'-Me	CF ₃
1-29	Et	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-30	CF ₃	-	-	CF ₃
1-31	CF ₃	-	4'-F	CF ₃
1-32	CF ₃	-	4'-Cl	CF ₃
1-33	CF ₃	-	4'-Me	CF ₃
1-34	CF ₃	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-35	c-Pr	-	-	CF ₃
1-36	c-Pr	-	4'-F	CF ₃
1-37	c-Pr	-	4'-Cl	CF ₃
1-38	c-Pr	-	4'-Me	CF ₃
1-39	c-Pr	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-40	CH=CH ₂	-	-	CF ₃
1-41	CH=CH ₂	-	4'-F	CF ₃
1-42	CH=CH ₂	-	4'-Cl	CF ₃
1-43	CH=CH ₂	-	4'-Me	CF ₃
1-44	CH=CH ₂	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-45	-C≡CH	-	-	CF ₃
1-46	-C≡CH	-	4'-F	CF ₃
1-47	-C≡CH	-	4'-Cl	CF ₃
1-48	-C≡CH	-	4'-Me	CF ₃
1-49	-C≡CH	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-50	Me	4-F	-	CF ₃

【表3】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
1-51	Me	4-F	4'-F	CF ₃
1-52	Me	4-F	4'-Cl	CF ₃
1-53	Me	4-F	4'-Me	CF ₃
1-54	Me	4-F	4'-CF ₃	CF ₃
1-55	OMe	-	-	CF ₃
1-56	OMe	-	2'-F	CF ₃
1-57	OMe	-	3'-F	CF ₃
1-58	OMe	-	3'-Cl	CF ₃
1-59	OMe	-	4'-F	CF ₃
1-60	OMe	-	4'-Cl	CF ₃
1-61	OMe	-	4'-Br	CF ₃
1-62	OMe	-	4'-Me	CF ₃
1-63	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-64	OMe	-	4'-OMe	CF ₃
1-65	OMe	-	4'-OCF ₃	CF ₃
1-66	OMe	-	4'-SMe	CF ₃
1-67	OMe	-	3', 4'-diCl	CF ₃
1-68	OMe	-	3'-Me-4'-Cl	CF ₃
1-69	OMe	-	3'-F-4'-Cl	CF ₃
1-70	OMe	-	3'-Cl-4'-CF ₃	CF ₃
1-71	OMe	-	2', 4'-diF	CF ₃
1-72	OMe	-	2', 5'-diF	CF ₃
1-73	OMe	-	4'-SiMe ₃	CF ₃
1-74	Oi-Pr	-	-	CF ₃
1-75	Oi-Pr	-	4'-F	CF ₃

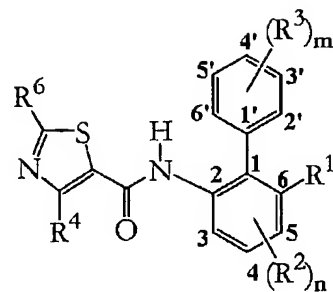
【表4】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
1-76	Oi-Pr	-	4'-Cl	CF ₃
1-77	Oi-Pr	-	4'-Me	CF ₃
1-78	Oi-Pr	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-79	OCF ₃	-	-	CF ₃
1-80	OCF ₃	-	4'-F	CF ₃
1-81	OCF ₃	-	4'-Cl	CF ₃
1-82	OCF ₃	-	4'-Me	CF ₃
1-83	OCF ₃	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-84	Cl	-	-	CF ₃
1-85	Cl	-	2'-F	CF ₃
1-86	Cl	-	3'-F	CF ₃
1-87	Cl	-	3'-Cl	CF ₃
1-88	Cl	-	4'-F	CF ₃
1-89	Cl	-	4'-Cl	CF ₃
1-90	Cl	-	4'-Br	CF ₃
1-91	Cl	-	4'-Me	CF ₃
1-92	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃
1-93	Cl	-	4'-OMe	CF ₃
1-94	Cl	-	4'-OCF ₃	CF ₃
1-95	Cl	-	4'-SMe	CF ₃
1-96	Cl	-	3', 4'-diCl	CF ₃
1-97	Cl	-	3'-Me-4'-Cl	CF ₃
1-98	Cl	-	3'-F-4'-Cl	CF ₃
1-99	Cl	-	3'-Cl-4'-CF ₃	CF ₃
1-100	Cl	-	2', 4'-diF	CF ₃

【表5】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
1-101	Cl	-	2', 5'-diF	CF ₃
1-102	Cl	-	4'-SiMe ₃	CF ₃

一般式 化8
【化8】



で示される化合物。

【表6】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁶
2-1	Me	-	-	CF ₃	Me
2-2	Me	-	2'-F	CF ₃	Me
2-3	Me	-	3'-F	CF ₃	Me
2-4	Me	-	3'-Cl	CF ₃	Me
2-5	Me	-	4'-F	CF ₃	Me
2-6	Me	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-7	Me	-	4'-Br	CF ₃	Me
2-8	Me	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-9	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-10	Me	-	4'-OMe	CF ₃	Me
2-11	Me	-	4'-OCF ₃	CF ₃	Me
2-12	Me	-	4'-SMe	CF ₃	Me
2-13	Me	-	3',4'-diCl	CF ₃	Me
2-14	Me	-	3'-Me-4'-Cl	CF ₃	Me
2-15	Me	-	3'-F-4'-Cl	CF ₃	Me
2-16	Me	-	3'-Cl-4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-17	Me	-	2',4'-diF	CF ₃	Me
2-18	Me	-	2',5'-diF	CF ₃	Me
2-19	Me	-	4'-SiMe ₃	CF ₃	Me
2-20	Me	-	-	CHF ₂	Me
2-21	Me	-	4'-F	CHF ₂	Me
2-22	Me	-	4'-Cl	CHF ₂	Me
2-23	Me	-	4'-Me	CHF ₂	Me
2-24	Me	-	4'-CF ₃	CHF ₂	Me
2-25	Et	-	-	CF ₃	Me

【表7】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁶
2-26	Et	-	4'-F	CF ₃	Me
2-27	Et	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-28	Et	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-29	Et	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-30	CF ₃	-	-	CF ₃	Me
2-31	CF ₃	-	4'-F	CF ₃	Me
2-32	CF ₃	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-33	CF ₃	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-34	CF ₃	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-35	c-Pr	-	-	CF ₃	Me
2-36	c-Pr	-	4'-F	CF ₃	Me
2-37	c-Pr	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-38	c-Pr	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-39	c-Pr	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-40	CH=CH ₂	-	-	CF ₃	Me
2-41	CH=CH ₂	-	4'-F	CF ₃	Me
2-42	CH=CH ₂	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-43	CH=CH ₂	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-44	CH=CH ₂	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-45	-C≡CH	-	-	CF ₃	Me
2-46	-C≡CH	-	4'-F	CF ₃	Me
2-47	-C≡CH	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-48	-C≡CH	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-49	-C≡CH	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-50	Me	4-F	-	CF ₃	Me

【表8】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁶
2-51	Me	4-F	4'-F	CF ₃	Me
2-52	Me	4-F	4'-Cl	CF ₃	Me
2-53	Me	4-F	4'-Me	CF ₃	Me
2-54	Me	4-F	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-54	Me	4-F	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-56	OMe	-	2'-F	CF ₃	Me
2-57	OMe	-	3'-F	CF ₃	Me
2-58	OMe	-	3'-Cl	CF ₃	Me
2-59	OMe	-	4'-F	CF ₃	Me
2-60	OMe	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-61	OMe	-	4'-Br	CF ₃	Me
2-62	OMe	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-63	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-64	OMe	-	4'-OMe	CF ₃	Me
2-65	OMe	-	4'-OCF ₃	CF ₃	Me
2-66	OMe	-	4'-SMe	CF ₃	Me
2-67	OMe	-	3',4'-diCl	CF ₃	Me
2-68	OMe	-	3'-Me-4'-Cl	CF ₃	Me
2-69	OMe	-	3'-F-4'-Cl	CF ₃	Me
2-70	OMe	-	3'-Cl-4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-71	OMe	-	2',4'-diF	CF ₃	Me
2-72	OMe	-	2',5'-diF	CF ₃	Me
2-73	OMe	-	4'-SiMe ₃	CF ₃	Me
2-74	Oi-Pr	-	-	CF ₃	Me
2-75	Oi-Pr	-	4'-F	CF ₃	Me

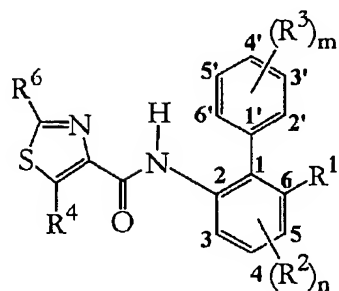
【表9】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁶
2-76	Oi-Pr	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-77	Oi-Pr	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-78	Oi-Pr	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-79	OCF ₃	-	-	CF ₃	Me
2-80	OCF ₃	-	4'-F	CF ₃	Me
2-81	OCF ₃	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-82	OCF ₃	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-83	OCF ₃	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-84	Cl	-	-	CF ₃	Me
2-85	Cl	-	2'-F	CF ₃	Me
2-86	Cl	-	3'-F	CF ₃	Me
2-87	Cl	-	3'-Cl	CF ₃	Me
2-88	Cl	-	4'-F	CF ₃	Me
2-89	Cl	-	4'-Cl	CF ₃	Me
2-90	Cl	-	4'-Br	CF ₃	Me
2-91	Cl	-	4'-Me	CF ₃	Me
2-92	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-93	Cl	-	4'-OMe	CF ₃	Me
2-94	Cl	-	4'-OCF ₃	CF ₃	Me
2-95	Cl	-	4'-SMe	CF ₃	Me
2-96	Cl	-	3',4'-diCl	CF ₃	Me
2-97	Cl	-	3'-Me-4'-Cl	CF ₃	Me
2-98	Cl	-	3'-F-4'-Cl	CF ₃	Me
2-99	Cl	-	3'-Cl-4'-CF ₃	CF ₃	Me
2-100	Cl	-	2',4'-diF	CF ₃	Me

【表10】

2-101	Cl	-	2',5'-diF	CF ₃	Me
2-102	Cl	-	4'-SiMe ₃	CF ₃	Me

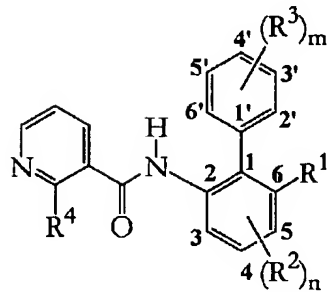
一般式 化9
【化9】



で示される化合物。
【表11】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁶
3-1	Me	-	-	CF ₃	Me
3-2	Me	-	4'-F	CF ₃	Me
3-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃	Me
3-4	Me	-	4'-Me	CF ₃	Me
3-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
3-6	OMe	-	-	CF ₃	Me
3-7	OMe	-	4'-F	CF ₃	Me
3-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃	Me
3-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃	Me
3-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me
3-11	Cl	-	-	CF ₃	Me
3-12	Cl	-	4'-F	CF ₃	Me
3-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃	Me
3-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃	Me
3-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃	Me

一般式 化10
【化10】

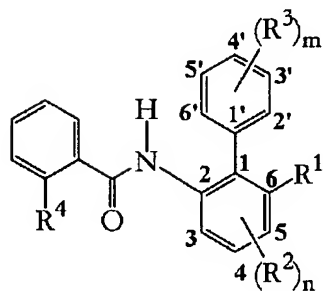


で示される化合物。
【表12】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
4-1	Me	-	-	Cl
4-2	Me	-	4'-F	Cl
4-3	Me	-	4'-Cl	Cl
4-4	Me	-	4'-Me	Cl
4-5	Me	-	4'-CF ₃	Cl
4-6	Me	-	4'-OMe	Cl
4-7	Me	-	4'-OCF ₃	Cl
4-8	Me	-	4'-SMe	Cl
4-9	Me	-	-	CF ₃
4-10	Me	-	4'-F	CF ₃
4-11	Me	-	4'-Cl	CF ₃
4-12	Me	-	4'-Me	CF ₃
4-13	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃
4-14	OMe	-	-	Cl
4-15	OMe	-	4'-F	Cl
4-16	OMe	-	4'-Cl	Cl
4-17	OMe	-	4'-Me	Cl
4-18	OMe	-	4'-CF ₃	Cl
4-19	Cl	-	-	Cl
4-20	Cl	-	4'-F	Cl
4-21	Cl	-	4'-Cl	Cl
4-22	Cl	-	4'-Me	Cl
4-23	Cl	-	4'-CF ₃	Cl

一般式 化11
【化11】

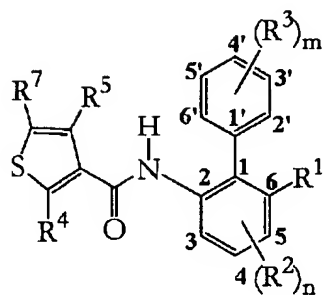
で示される化合物。
【表13】



番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
5-1	Me	-	-	CF ₃
5-2	Me	-	4'-F	CF ₃
5-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃
5-4	Me	-	4'-Me	CF ₃
5-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃
5-6	OMe	-	-	CF ₃
5-7	OMe	-	4'-F	CF ₃
5-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃
5-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃
5-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃
5-11	Cl	-	-	CF ₃
5-12	Cl	-	4'-F	CF ₃
5-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃
5-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃
5-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃

一般式 化12
【化12】

で示される化合物。
【表14】



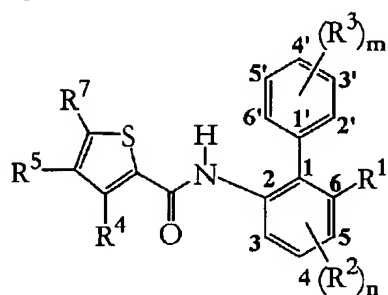
番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁵	R ⁷
6-1	Me	-	-	CF ₃	H	H
6-2	Me	-	4'-F	CF ₃	H	H
6-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
6-4	Me	-	4'-Me	CF ₃	H	H
6-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
6-6	OMe	-	-	CF ₃	H	H
6-7	OMe	-	4'-F	CF ₃	H	H
6-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
6-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃	H	H
6-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
6-11	Cl	-	-	CF ₃	H	H
6-12	Cl	-	4'-F	CF ₃	H	H
6-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
6-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃	H	H
6-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H

一般式 化13

【化13】

で示される化合物。

【表15】



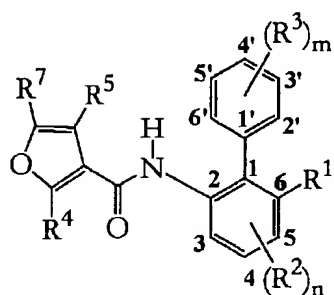
番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁵	R ⁷
7-1	Me	-	-	CF ₃	H	H
7-2	Me	-	4'-F	CF ₃	H	H
7-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
7-4	Me	-	4'-Me	CF ₃	H	H
7-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
7-6	OMe	-	-	CF ₃	H	H
7-7	OMe	-	4'-F	CF ₃	H	H
7-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
7-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃	H	H
7-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
7-11	Cl	-	-	CF ₃	H	H
7-12	Cl	-	4'-F	CF ₃	H	H
7-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
7-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃	H	H
7-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H

一般式 化14

【化14】

で示される化合物。

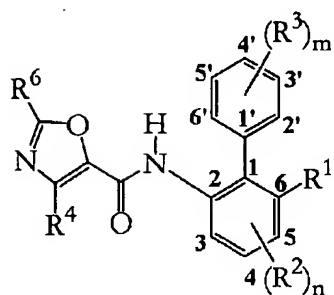
【表16】



番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	R ⁵	R ⁷
8-1	Me	-	-	CF ₃	H	H
8-2	Me	-	4'-F	CF ₃	H	H
8-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
8-4	Me	-	4'-Me	CF ₃	H	H
8-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
8-6	OMe	-	-	CF ₃	H	H
8-7	OMe	-	4'-F	CF ₃	H	H
8-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
8-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃	H	H
8-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H
8-11	Cl	-	-	CF ₃	H	H
8-12	Cl	-	4'-F	CF ₃	H	H
8-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃	H	H
8-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃	H	H
8-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃	H	H

一般式 化15

【化15】



で示される化合物。

【表17】

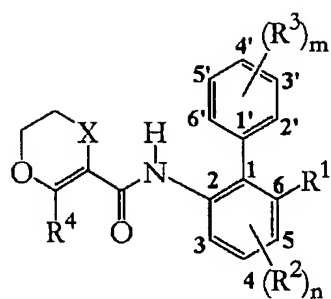
番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
9-1	Me	-	-	CF ₃
9-2	Me	-	4'-F	CF ₃
9-3	Me	-	4'-Cl	CF ₃
9-4	Me	-	4'-Me	CF ₃
9-5	Me	-	4'-CF ₃	CF ₃
9-6	OMe	-	-	CF ₃
9-7	OMe	-	4'-F	CF ₃
9-8	OMe	-	4'-Cl	CF ₃
9-9	OMe	-	4'-Me	CF ₃
9-10	OMe	-	4'-CF ₃	CF ₃
9-11	Cl	-	-	CF ₃
9-12	Cl	-	4'-F	CF ₃
9-13	Cl	-	4'-Cl	CF ₃
9-14	Cl	-	4'-Me	CF ₃
9-15	Cl	-	4'-CF ₃	CF ₃

一般式 化16

【化16】

で示される化合物。

【表18】

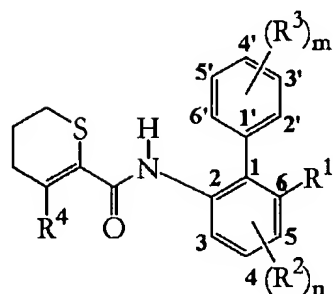


番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	X
10-1	Me	-	-	Me	S
10-2	Me	-	4'-F	Me	S
10-3	Me	-	4'-Cl	Me	S
10-4	Me	-	4'-Me	Me	S
10-5	Me	-	4'-CF ₃	Me	S
10-6	OMe	-	-	Me	S
10-7	OMe	-	4'-F	Me	S
10-8	OMe	-	4'-Cl	Me	S
10-9	OMe	-	4'-Me	Me	S
10-10	OMe	-	4'-CF ₃	Me	S
10-11	Cl	-	-	Me	S
10-12	Cl	-	4'-F	Me	S
10-13	Cl	-	4'-Cl	Me	S
10-14	Cl	-	4'-Me	Me	S
10-15	Cl	-	4'-CF ₃	Me	S
10-16	Me	-	-	Me	CH ₂
10-17	Me	-	4'-F	Me	CH ₂
10-18	Me	-	4'-Cl	Me	CH ₂
10-19	Me	-	4'-Me	Me	CH ₂
10-20	Me	-	4'-CF ₃	Me	CH ₂
10-21	OMe	-	-	Me	CH ₂
10-22	OMe	-	4'-F	Me	CH ₂
10-23	OMe	-	4'-Cl	Me	CH ₂
10-24	OMe	-	4'-Me	Me	CH ₂
10-25	OMe	-	4'-CF ₃	Me	CH ₂

【表19】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴	X
10-26	Cl	-	-	Me	CH ₂
10-27	Cl	-	4'-F	Me	CH ₂
10-28	Cl	-	4'-Cl	Me	CH ₂
10-29	Cl	-	4'-Me	Me	CH ₂
10-30	Cl	-	4'-CF ₃	Me	CH ₂

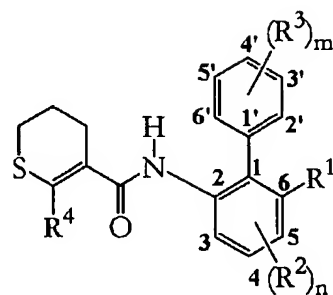
一般式 化17
【化17】



で示される化合物。
【表20】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
11-1	Me	-	-	Me
11-2	Me	-	4'-F	Me
11-3	Me	-	4'-Cl	Me
11-4	Me	-	4'-Me	Me
11-5	Me	-	4'-CF ₃	Me
11-6	OMe	-	-	Me
11-7	OMe	-	4'-F	Me
11-8	OMe	-	4'-Cl	Me
11-9	OMe	-	4'-Me	Me
11-10	OMe	-	4'-CF ₃	Me
11-11	Cl	-	-	Me
11-12	Cl	-	4'-F	Me
11-13	Cl	-	4'-Cl	Me
11-14	Cl	-	4'-Me	Me
11-15	Cl	-	4'-CF ₃	Me

一般式 化18
【化18】



で示される化合物。
【表21】

番号	R ¹	(R ²) _n	(R ³) _m	R ⁴
12-1	Me	-	-	Me
12-2	Me	-	4'-F	Me
12-3	Me	-	4'-Cl	Me
12-4	Me	-	4'-Me	Me
12-5	Me	-	4'-CF ₃	Me
12-6	OMe	-	-	Me
12-7	OMe	-	4'-F	Me
12-8	OMe	-	4'-Cl	Me
12-9	OMe	-	4'-Me	Me
12-10	OMe	-	4'-CF ₃	Me
12-11	Cl	-	-	Me
12-12	Cl	-	4'-F	Me
12-13	Cl	-	4'-Cl	Me
12-14	Cl	-	4'-Me	Me
12-15	Cl	-	4'-CF ₃	Me

【0042】尚、上記の表において、Meはメチル基を、Etはエチル基を、Prはプロピル基を、i-Prはイソプロピル基を、c-Prはシクロプロピル基を意味する。また置換基の前に付した数字は、ベンゼン環上の置換位置を表わす。

【0043】次に製剤例を示す。なお、部は重量部を表わし、本発明化合物は前記表1から表21に記載の番号で示す。

製剤例1

本発明化合物1-1～1-102、2-1～2-10

2、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々50部、リグニンスルホン酸カルシウム3部、ラウリル硫酸ナトリウム2部及び合成含水酸化珪素45部をよく粉砕混合することにより、各々の水和剤を得る。

製剤例2

本発明化合物1-1~1-102、2-1~2-102、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々20部とソルビタントリオレート1.5部とを、ポリビニルアルコール2部を含む水溶液28.5部と混合し、湿式粉砕法で微粉砕した後、この中に、キサンタンガム0.05部及びアルミニウムマグネシウムシリケート0.1部を含む水溶液40部を加え、さらにプロピレングリコール10部を加えて攪拌混合し各々のフロアブル製剤を得る。

製剤例3

本発明化合物1-1~1-102、2-1~2-102、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々2部、カオリンクレ-88部及びタルク10部をよく粉砕混合することにより、各々の粉剤を得る。

【0044】製剤例4

本発明化合物1-1~1-102、2-1~2-102、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々5部、ポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル14部、ドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム6部及びキシレン75部をよく混合することにより、各々の乳剤を得る。

製剤例5

本発明化合物1-1~1-102、2-1~2-102、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々2部、合成含水酸化珪素1部、リグニンスルホン酸カ

ルシウム2部、ベントナイト30部及びカオリンクレ-65部をよく粉砕混合し、水を加えてよく練り合せた後、造粒乾燥することにより、各々の粒剤を得る。

製剤例6

本発明化合物1-1~1-102、2-1~2-102、3-1~3-15、4-1~4-23、5-1~5-15、6-1~6-15、7-1~7-15、8-1~8-15、9-1~9-15、10-1~10-30、11-1~11-15、12-1~12-15の各々10部、ポリオキシエチレンアルキルエーテルサルフェートアンモニウム塩50部を含むホホワイトカーボン35部、及び水55部を混合し、湿式粉砕法で微粉砕することにより、各々のフロアブル製剤を得る。

【0045】次に、本発明化合物が農園芸用殺菌剤として有用であることを試験例で示す。なお、本発明化合物は表1~表21に記載の番号で示す。また、比較対象化合物として、N-(4'-クロロ-6-フルオロ-ビフェニル-2-イル)-1-メチル-3-トリフルオロメチル-1H-ピラゾール-4-カルボン酸アミド(以下、化合物Aと記す。)を用いた。化合物AはWO-97-08148号公報に記載の化合物番号3.20の化合物である。本発明化合物の防除効果は、調査時の供試植物上の病斑の面積を肉眼観察し、無処理区の病斑の面積と本発明化合物処理区の病斑の面積を比較することにより下記の指数を用いて評価した。

5:病斑が全く認められない。

4:病斑面積が、無処理区の10%以下

3:病斑面積が、無処理区の11%~30%

2:病斑面積が、無処理区の31%~50%

1:病斑面積が、無処理区の51%~75%

0:病斑面積が、無処理区の76%以上

【0046】試験例1:キュウリ灰色かび病防除試験(予防効果)

プラスチックポットに砂壤土を詰め、キュウリ(相模半白)を播種し、温室内で12日間生育させた。その後、本発明化合物1-6、1-8、1-60、1-89、2-6、2-10及び化合物A(対象化合物)の各々を、製剤例6に準じてフロアブル製剤とした後、水で所定濃度(200ppmおよび50ppm)に希釈し、それを、そのキュウリの葉面に充分付着するように茎葉散布した。散布後植物を風乾し、灰色かび病菌胞子含有PDA培地をキュウリ葉面上に置き接種した。接種後10℃、多湿下に5日間置いた後、防除効果を調査した。結果を表22に示す。

【表22】

化合物番号	有効成分 濃度	効力 評価	有効成分 濃度	効力 評価
1-6	200ppm	5	50ppm	5
1-8	200ppm	5	50ppm	4
1-60	200ppm	5	50ppm	5
1-89	200ppm	5	50ppm	5
2-6	200ppm	4	50ppm	4
2-10	200ppm	4	50ppm	4
A (対象化合物)	200ppm	2	50ppm	0

【0047】試験例2：ダイコン黒すす病防除試験（予防効果）

プラスチックポットに砂壌土を詰め、ダイコン（早生40日大根）を播種し、温室内で5日間生育させた。本発明化合物1-6、1-8、1-60、1-89、2-6、2-10及び化合物A（対象化合物）の各々を、製剤例6に準じてフロアブル製剤とした後、水で所定濃度

（200ppmおよび50ppm）に希釈し、それを、そのダイコンに充分付着するように茎葉散布した。散布後植物を風乾し、キャベツ黒すす病菌の胞子を噴霧接種した。接種後23℃、多湿下に一晚置き、さらに温室内で3日置いた後、防除効果を調査した。結果を表23に示す。

【表23】

化合物番号	有効成分 濃度	効力 評価	有効成分 濃度	効力 評価
1-6	200ppm	5	50ppm	5
1-8	200ppm	4	50ppm	4
1-60	200ppm	4	50ppm	4
1-89	200ppm	5	50ppm	4
2-6	200ppm	5	50ppm	5
2-10	200ppm	5	50ppm	4
A (対象化合物)	200ppm	1	50ppm	0

【0048】試験例3：キュウリうどんこ病防除効果試験（予防効果）

プラスチックポットに砂壌土を詰め、キュウリ（相模半白）を播種し、温室内で12日間生育させた。本発明化合物1-5、1-6、1-8、1-9、1-89、2-6、4-3および5-5の各々を製剤例6に準じてフロアブル製剤とした後、水で希釈し所定濃度（500ppm）にし、それを、そのキュウリ葉面に充分付着するように茎葉散布した。散布後植物を風乾し、キュウリうどんこ

病菌の胞子を接種した。接種後23℃下に12日置いた後、防除効果を調査した。その結果、本発明化合物1-5、1-6、1-8、1-9、1-89、2-6、4-3および5-5処理区の植物上の病斑面積は、無処理区の病斑面積の10%以下であった。

【0049】

【発明の効果】本発明化合物は、優れた植物病害防除効力を有する。

フロントページの続き

(51)Int. Cl.⁷

A01N 43/18
43/32
43/40
43/56
43/76

識別記号

101

FI

A01N 43/18
43/32
43/40
43/56
43/76

テームト（参考）

A 4C062
4H006
101C 4H011
D

43/78
55/00
C O 7 D 213/82
231/14
263/34
277/32
307/68
309/28
327/06
333/38
335/02

43/78
55/00
C O 7 D 213/82
231/14
263/34
277/32
307/68
309/28
327/06
333/38
335/02

B
D

F ターム(参考) 4C023 HA04 JA01
4C033 AD03 AD16 AD17
4C037 MA03
4C055 AA01 BA02 BA06 BA13 BA39
CA02 CA58 CB04 CB07 CB08
CB09 DA01
4C056 AA01 AB01 AC02 AD01 AE03
BA03 BB14 BC01
4C062 BB20
4H006 AA01 AB03 BJ50 BM10 BM30
BV74
4H011 AA01 BA01 BB06 BB08 BB09
BB10 BC01 BC03 BC07 BC18
BC19 BC20 DA02 DA15 DA16
DC01 DD03 DE15 DH03 DH14